

# PATENT COOPERATION TREATY

**PCT**

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing (day/month/year)</b> 04 May 2001 (04.05.01)	
<b>International application No.</b> PCT/JP00/05906	<b>Applicant's or agent's file reference</b> 661956
<b>International filing date (day/month/year)</b> 31 August 2000 (31.08.00)	<b>Priority date (day/month/year)</b> 01 September 1999 (01.09.99)
<b>Applicant</b> HIGUCHI, Tetsuya et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
29 March 2001 (29.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  
\_\_\_\_\_

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	<b>Authorized officer</b> Maria Kirchner Telephone No.: (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001 年 3 月 8 日 (08.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/16215 A1

- (51) 国際特許分類: C08J 3/24, 3/20 (HIGUCHI, Tetsuya) [JP/JP]. 中島昭浩 (NAKASHIMA, Akihiro) [JP/JP]. 植田 豊 (UETA, Yutaka) [JP/JP]. 小松 聡 (KOMATSU, Satoshi) [JP/JP]; 〒566-8585 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社 淀川製作所内 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/05906
- (22) 国際出願日: 2000 年 8 月 31 日 (31.08.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (74) 代理人: 青山 葆, 外(AOYAMA, Tamotsu et al.); 〒540-0001 大阪府大阪市中央区城見1丁目3番7号 IMPビル 青山特許事務所 Osaka (JP).
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, JP, US.
- (30) 優先権データ: 特願平11/247332 1999 年 9 月 1 日 (01.09.1999) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイキン工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル Osaka (JP). 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 樋口 哲也

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING ELASTIC FLUOROCOPOLYMER COMPOSITION

(54) 発明の名称: 含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法

(57) Abstract: A process for producing a composition comprising an elastic fluorocopolymer, a vulcanizing agent, and a vulcanization accelerator, which comprises the steps of coagulating an elastic fluorocopolymer in an aqueous dispersion thereof, collecting the copolymer coagulate, and drying the coagulate while kneading it, and in which a compatibilized mixture of a vulcanizing agent and a vulcanization accelerator is added to the coagulate. Thus, a fluororubber composition can be obtained in which the vulcanizing agent and the vulcanization accelerator are evenly dispersed in the fluororubber and which gives a vulcanizate having stable properties.

(57) 要約:

含フッ素弾性状共重合体、加硫剤および加硫促進剤を含んでなる含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法であって、該方法は、含フッ素弾性状共重合体の水性分散液から該共重合体を凝析して得られた共重合体の凝集物を混練しながら乾燥する工程を有し、凝集物に、加硫剤と加硫促進剤との相溶物を添加する含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法によれば、加硫剤および加硫促進剤が均一にフッ素ゴム中に分散され、加硫物性が安定したフッ素ゴム組成物を得ることができる。

WO 01/16215 A1

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 明 細 書

## 含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法

## 5 発明の分野

本発明は、含フッ素弾性状共重合体（以下、単に「フッ素ゴム」ともいう。）を含んでなる含フッ素弾性状共重合体組成物の製法に関し、さらに詳しくは、ポリヒドロキシ化合物またはその塩を加硫成分として含有する含フッ素弾性状共重合体組成物の製法に関する。

10

## 関連技術

ビニリデンフルオライドと少なくとも1種の他の含フッ素単量体とから得られるフッ素ゴムは、優れた耐熱性、耐薬品性、耐油性を示し、さまざまな産業で使用されている。過酷な条件での上記性質を満足するには、加硫による重合体の硬化が必要である。

15

フッ素ゴムは、水溶性開始剤および油溶性開始剤の一方または両方を用いてモノマーを共重合することにより製造される。例えば、特公昭56-29895号公報や特公昭56-34009号公報（米国特許第4,141,874号）には、重合の第1段階において水溶性開始剤を用い、第2段階において油溶性開始剤を使用する2段階重合によりフッ素ゴムを製造する方法が開示されている。この場合、油溶性開始剤を用いる第2段階の重合では、媒体に乳化剤を添加して油溶性開始剤を均一に分散させている。

20

得られたフッ素ゴムは、加硫剤（例えば、ポリヒドロキシ化合物）および加硫促進剤（例えば、第四級アンモニウム塩）と混合され、加硫用組成物とされる。

25

フッ素ゴムに加硫剤および加硫促進剤を混合する方法には、大別して、フッ素ゴムの水性分散液に加硫剤および加硫促進剤を加えて凝析する方法と、フッ素ゴムを水性分散液から凝析により取り出し、乾燥したのち、加硫剤および加硫促進剤と共に混練する方法とがある。

特公昭56-34009号公報（米国特許第4,141,874号）には、

フッ素ゴムに、受酸剤、ポリヒドロキシ芳香族化合物および特定の第四級アンモニウム化合物を配合して混練したフッ素ゴム組成物が開示されている。

ところが、混練は、作業性が悪く、またフッ素ゴムに加硫剤および加硫促進剤とを均一に混合することは困難である。さらに、粘度の高いフッ素ゴムを混練する

5 には大きなエネルギーが必要である。また、第四級アンモニウム化合物は吸湿性であるため、大気中の水分を吸収するので、取り扱い性が悪い。

一方、フッ素ゴムの水性乳濁体または水性分散液に、加硫促進剤として第四級アンモニウム化合物および／または第四級ホスホニウム化合物を添加して、凝析することにより、フッ素ゴム加硫用組成物を得る方法が、特開昭56-1478  
10 40号公報に開示されている。この方法によれば、フッ素ゴムと加硫剤および加硫促進剤とを均一に混合することができ、混練よりも効率がよい。

しかしながら、上述のように第四級アンモニウム化合物は吸湿性であるため、水性分散液からフッ素ゴムと共に凝析する際に、水性媒体に取り込まれる傾向があり、所定量の第四級アンモニウム化合物をフッ素ゴムに配合しようとする、  
15 所定量以上の第四級アンモニウム化合物を水性分散液に添加する必要がある上、フッ素ゴムに取り込まれる量は不安定である。

油溶性開始剤を用いて得たフッ素ゴム水性分散液、およびフッ素ゴム水性乳濁体はいずれも乳化剤を含んでいる。ところが、第四級アンモニウム化合物の作用は、乳化剤により阻害されることが分かっている。

20 上記2段階重合により製造したフッ素ゴムに、混練によりポリヒドロキシ芳香族化合物と第四級ホスホニウム塩とを配合することがWO96/17876 (PCT/JP95/2485) に記載されている。しかし、第四級ホスホニウム塩の作用も、乳化剤により阻害されることが知られている。

特公昭57-14775号公報には、第四級アンモニウム化合物の吸湿性の影  
25 響を避けるために、第四級アンモニウム化合物とポリヒドロキシ芳香族化合物との固溶体を用いて、フッ素ゴムと混練することが開示されている。しかし、この方法においては、固溶体の分散不良が生じて、その結果、成形品の加硫物性が安定しない。

特開昭50-22048号公報には、含水率が約15～35重量%で含フッ素

弾性状共重合体ラテックスの凝固生成物である湿った含フッ素弾性状共重合体塊状物を混合区域に連続的に供給し、加硫剤および加硫促進剤を微粉末で供給し、含フッ素弾性状共重合体塊状物の粒子径を維持しつつ混合することからなる含フッ素弾性状共重合体組成物の製法が開示されている。この混合操作については、

5 加硫剤および加硫促進剤を微粉末で水性分散液の形で混合区域に供給すること、含フッ素弾性状共重合体と混合物中に存在する硬化成分または他の添加物との間の有害な反応がおこらないように充分に温度は低く保つべきであると記載されている。しかし、硬化成分の第4級ホスホニウム塩は水溶性であり、容易に溶解するものであるため、押出機等の装置で処理すると分離した水とともにロスされて

10 しまう。また、含フッ素弾性状共重合体塊状物の粒子径を維持しつつ混合するので、組成物の均一性も限界がある。さらに、微粉末固体材料の連続的な定量供給は困難なため、所定量配合することができず、成形品の加硫物性が安定しない。

一般的に含フッ素弾性状共重合体組成物は、ニーダー等の装置を用いてフッ素ゴムと加硫剤、加硫促進剤等を混練りすることにより作られる。しかし、ニー

15 ダーでの混練りは大きなエネルギーを要する他に、ニーダーへの原料の仕込み等作業者にきつい仕事の問題である。また、加硫剤、加硫促進剤は通常粉体であり、ニーダーへ仕込む際の作業員への危害も問題視されている。

#### 発明の概要

20 本発明の1つの目的は、フッ素ゴムの加硫用の組成物を効率よく製造する方法を提供することである。

本発明の他の目的は、加硫剤および加硫促進剤が均一にフッ素ゴム中に分散され、加硫物性が安定したフッ素ゴム組成物を得ることができる方法を提供することである。

25 本発明は、含フッ素弾性状共重合体、加硫剤および加硫促進剤を含んでなる含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法であって、

該方法は、含フッ素弾性状共重合体の水性分散液から該共重合体を凝析して得られた共重合体の凝集物を混練しながら乾燥する工程を有し、

凝集物に、加硫剤と加硫促進剤との相溶物を添加する含フッ素弾性状共重合体

組成物の製造方法を提供する。

#### 発明の詳細な説明

- フッ素ゴムは、ビニリデンフルオライドと少なくとも1種の他の含フッ素単量
- 5 体との弾性状共重合体である。他の含フッ素単量体としては、例えば、テトラフル  
オロエチレン、トリフルオロクロロエチレン、トリフルオロエチレン、ヘキサ  
フルオロプロピレン、ペンタフルオロプロピレン、パーフルオロ（メチルビニル  
エーテル）、パーフルオロ（エチルビニルエーテル）、パーフルオロ（プロピル  
ビニルエーテル）などが挙げられる。
- 10 フッ素ゴムの水性分散液は、従来技術において知られている重合方法のいずれ  
によって得られたものでもよい。本発明の方法は、重合の第1段階において水溶  
性開始剤を用い、第2段階において油溶性開始剤を使用する2段階重合により得  
られた水性分散液中に乳化剤を含んでよい前記2段階重合により得られる水性分  
散液に適用できる。
- 15 加硫剤の例は、ポリヒドロキシ化合物である。加硫剤として用いるポリヒドロ  
キシ化合物は、好ましくはポリヒドロキシ芳香族化合物である。ポリヒドロキシ  
芳香族化合物としては、フッ素ゴムの加硫剤として公知の化合物がいずれも用い  
られる。好ましい例は、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン（ビス  
フェノールーA）、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロパ  
20 ン（ビスフェノールーAF）、レゾルシン、1,3,5-トリヒドロキシベンゼン、  
1,7-ジヒドロキシナフタレン、2,7-ジヒドロキシナフタレン、1,6-ジ  
ヒドロキシナフタレン、4,4'-ジヒドロキシジフェニル、4,4'-ジヒドロ  
キシスチルベン、2,6-ジヒドロキシアンスラセン、ヒドロキノン、カテコー  
ル、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン（ビスフェノールーB）、4,  
25 4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)吉草酸、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニ  
ル)テトラフルオロジクロロプロパン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホ  
ン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルケトン、トリ(4-ヒドロキシフェニル)  
メタン、3,3',5,5'-テトラクロロビスフェノールーA、3,3',5,5'  
-テトラブロモビスフェノールーAなどが挙げられる。これらのアルカリ金属塩



またはアルカリ土類金属塩も用いることができる。

加硫促進剤の例はオニウム化合物である。オニウム化合物としては、アンモニウム化合物、ホスホニウム化合物、オキシニウム化合物、スルホニウム化合物等があるが、第四級アンモニウム塩、第四級ホスホニウム塩が好ましい。

- 5 第四級アンモニウム塩または第四級ホスホニウム塩としては、フッ素ゴムの加硫促進剤として知られているものがいずれも使用できる。好ましい例を挙げれば、以下の通りである。

第四級アンモニウム塩：

- 10 8-メチル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムクロリド、8-メチル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウム  
アイオダイド、8-メチル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセ  
ニウムヒドロキサイド、8-メチル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-  
ウンデセニウム-メチルスフエート、8-エチル-1,8-ジアザビシクロ[5.  
4.0]-7-ウンデセニウムブロミド、8-プロピル-1,8-ジアザビシクロ  
15 [5.4.0]-7-ウンデセニウムブロミド、8-ドデシル-1,8-ジアザビシ  
クロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムクロリド、8-ドデシル-1,8-ジアザ  
ビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムヒドロキサイド、8-エイコシル-1,  
8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムクロリド、8-テトラコシ  
ル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムクロリド、8-ベ  
20 ンジル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムクロリド、8  
-ベンジル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムヒドロキ  
サイド、8-フェネチル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニ  
ウムクロリド、8-(3-フェニルプロピル)-1,8-ジアザビシクロ[5.4.  
0]-7-ウンデセニウムクロリドなど。

- 25 第四級ホスホニウム塩：

テトラブチルホスホニウムクロリド、ベンジルトリフェニルホスホニウムクロ  
リド、ベンジルトリメチルホスホニウムクロリド、ベンジルトリブチルホスホ  
ニウムクロリドなど。

本願発明においては、オニウム化合物とポリヒドロキシ化合物またはその塩と

の相溶物を使用する。相溶物は、固溶体または熔融物である。

固溶体は、常套の方法で調製できる。例えば、本発明において用いる固溶体は、オニウム化合物とポリヒドロキシ化合物またはその塩とから得られるが、それぞれの成分を常法により均一状態にすればよく、たとえばその一例として両成分を

- 5 混合して加熱しその両成分が液化して均一に混合するまで熔融するか、または攪拌下に両成分を加熱熔融して均一に混合し、ついでこれを冷却することにより容易に得られる。

熔融物は、オニウム化合物とポリヒドロキシ化合物またはその塩、あるいはこれらの固溶体を、その融点以上に加熱して熔融状態にしたものである。

- 10 相溶物を構成する前記両成分の配合量は、ポリヒドロキシ化合物またはその塩 100 重量部に対してオニウム化合物を 5～400 重量部、とりわけ 10～100 重量部となるように調節するのが好ましい。

- なお、前記相溶物を構成する両成分の割合は、初めから適切な配合割合として  
15 しておくといいが、予め一定の割合で配合したものを作っておき、この相溶物を使用する際にポリヒドロキシ化合物またはその塩を追加して両成分の配合割合を調整することもできる。こうすることによって、一種類の相溶物のみによって、種々のオニウム化合物／ポリヒドロキシ化合物の重量比に対応することができる。

- 相溶物としては 2 種以上の相溶物を組み合わせて使用してもよく、たとえば、  
20 第四級アンモニウム塩とポリヒドロキシ化合物との相溶物と、第四級ホスホニウム塩とポリヒドロキシ化合物との相溶物とを併用することができる。

固溶体は、共重合体の凝集物に均一に混合させるため、粉末として用いてよい。たとえば、その平均粒径は好ましくは 10～2000  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは 10～1000  $\mu\text{m}$ 、例えば 20～300  $\mu\text{m}$ 、特に 20～50  $\mu\text{m}$  である。

- 加硫用組成物中の相溶物の含有量は、含フッ素弾性状共重合体 100 重量部当  
25 たり、通常 0.1～10 重量部、好ましくは 1～5 重量部である。

本発明の方法では、水性分散液から共重合体を凝析させ、凝析した共重合体を常套の方法により水性媒体から取り出す。

凝析は、常套の方法で行えばよい。例えば、共重合体の水性分散液に、適当な無機または有機酸（例えば、塩酸、硫酸、硝酸、リン酸、ギ酸、酢酸、蔞酸な

ど)を添加する。無機または有機凝析剤、例えば硫酸アルミニウム、塩化マグネシウム、塩化アンモニウム、カリミョウバン、ポリアルキルアミンまたはその塩などを使用することもできる。酸と凝析剤を併用してもよい。

本発明においては、共重合体凝集物の乾燥工程前、乾燥工程中または乾燥工程後に、相溶物を凝集物に添加する。次いで、共重合体と相溶物とを十分に混練りして、共重合体および相溶物からなるフッ素ゴム組成物を得る。凝集物を混練しながら乾燥する工程は、押出機において行える。相溶物の添加は、溶融物である場合に定量ポンプによって、あるいは固溶体である場合に定量フィーダーによって行える。

10 共重合体凝集物に相溶物を添加する態様としては次の3つの態様がある。

第1の態様において、凝集物の乾燥工程前に、相溶物を凝集物に添加する。共重合体の凝集物の乾燥工程前に、水性分散液から取り出した凝集物に相溶物を連続的に供給し、混練しつつ乾燥する。相溶物は、固溶体、特に粉末の固溶体であることが好ましい。凝析上がりの湿潤した共重合体に相溶物を乾燥工程直前に添加し、共重合体および相溶物を溶融混練しながら、乾燥することができる。共重合体の凝集物を乾燥工程のために連続的に押出機に供給する際に、相溶物（溶融物または固溶体）を連続的に押出機に供給することができる。固溶体の粉末は、押出機のホッパーから供給することができる。押出機において十分な混練および乾燥が行われる場合には、押出機の次のニーダーは採用しなくてもよい。

20 第2の態様において、凝集物の乾燥工程の途中において、相溶物を凝集物に添加する。溶融状態の共重合体に、溶融状態の相溶物を添加することが好ましい。乾燥工程の途中にある共重合体を押出機（例えば、二軸押出機）で溶融混練しながら溶融状態の相溶物を添加できる。凝集物の揮発分（例えば、水、乳化剤、オリゴマー）が少ない状態で（即ち、乾燥工程の完了に近い状態で）相溶物を添加  
25 することが好ましい。揮発分（特に、含水量）が、例えば0.01重量%以上で1.5重量%未満、特に0.05～0.5重量%である凝集物に相溶物を添加してよい。揮発分の量とは、凝集物全体に対する揮発分の重量割合を意味する。共重合体凝集物を乾燥工程に連続的に供給し、その乾燥工程の中途において、相溶物を溶融状態で連続的に供給し、混練しつつ乾燥を継続してよい。1台の押出機が、

凝集物の脱水と乾燥を行う乾燥ゾーンと、脱水乾燥した凝集物と相溶物を混練する混練ゾーンを有してよい。「脱水」とは、一般に、スクリー間で凝集物から水が絞り出されることを意味する。押出機における共重合体と相溶物の重量比が一定になるように、押出機に、相溶物を供給する定量ポンプ（例えば、プランジャーポンプ）を設けてもよい。

- 5    押出機において十分な混練および乾燥が行われる場合には、押出機の次のニーダーは採用しなくてもよい。

第3の態様において、凝集物の乾燥が終了した後に、相溶物を凝集物に添加する。本発明の方法は、混練しながら乾燥する工程の後に、混練工程をも有しており、溶融物または固溶体を乾燥工程終了後であり、混練工程前に添加してよい。

- 10   乾燥工程および混練工程を2つの押出機で行い、乾燥工程を分担する第1の押出機、および混練工程を分担する第2の押出機を用いることができる。第2の押出機は、例えば、表面更新型混練機であってよい。好ましくは第1の押出機は二軸押出機であり、第2の押出機は一軸または二軸押出機のいずれであってよい。第1押出機と第2押出機との間にギャポンプを設置すると、より均一な共重合体組成物が得られる。
- 15

なお、本発明において使用する含フッ素弾性状共重合体の水性分散液は、その製法に由来して、特に油溶性開始剤を使用した場合に、乳化剤を含んでいる。乳化剤は第四級アンモニウム化合物の作用を阻害する恐れがあるので、共重合体の凝析前に、酸を添加して、乳化剤の乳化作用を低下させておくことができる。

- 20   酸は、水性分散液のpHが2以下になるような量で添加するのが好ましい。

酸は、無機酸または有機酸のいずれであってよく、前者の例としては塩酸、硫酸、硝酸およびリン酸などが、また後者の例としてはギ酸、酢酸およびシュウ酸などのカルボン酸が挙げられる。

- 開始剤として用いる化合物の種類に由来して、水性分散液が酸性を呈することがある。この場合、共重合体の凝析前に、水性分散液に塩基を添加して、中和しておくことができる。
- 25

塩基は、水性分散液のpHが7～9になるような量で添加するのが好ましい。

塩基としては、アミン、アンモニア、アルカリ金属水酸化物、アルカリ土類金属水酸化物等が使用できるが、 $\text{NH}_4\text{OH}$ 、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$ が好ましい。

また、水性分散液には、予めフッ素ゴム組成物に通常添加される添加剤を加えておいてもよい。水性分散液に加えておいてよい添加剤としては、カーボンプラック、クレイ、珪藻土、タルクなどの充填剤や補強剤が例示できる。必要に応じて、可塑剤や着色剤を添加することもできる。

5

発明の好ましい態様

以下、実施例を示し、本発明を具体的に説明する。

#### 実施例 1

平均粒径が 5 mm 以下の含フッ素弾性状共重合体（フッ化ビニリデンとヘキサフルオロプロピレンとのモル比 78 / 22 の共重合体）（ムーニー粘度：ML<sub>1, 10</sub>（100℃）= 56）の湿潤凝集体（共重合体と同重量の水を含む。）を定量フィーダーを介して二軸押出機へ供給した。湿潤凝集体の供給速度は、約 50 kg / hr であった。二軸押出機に供給された凝集体は二軸スクリーにより脱水乾燥ゾーンへと送られ、多量の水分子が分離排出された。多量の水分子を脱水された凝集体はさらに二本のスクリーにより混練りされ、スクリー軸から与えられるエネルギーによる温度上昇とバレルに取り付けられたヒーターから与えられる熱量による温度上昇とで熔融状態となった。

熔融状態となった含フッ素弾性状共重合体は二本のスクリーにより混練りされ、表面更新を繰り返しながらその中に含まれる揮発成分（例えば、水、乳化剤、オリゴマー）は真空ベントロから吸引排除された。脱水乾燥ゾーンにおける共重合体の滞留時間は、5 分間であった。

脱水乾燥ゾーンの後、低揮発成分が排除された含フッ素弾性状共重合体（温度：185℃、含水率 0.1%）は混練ゾーンへと送られた。混練ゾーンの直前に、150℃で温調されたビスフェノール AF（BIS-AF）と DBU-B（8-ベンジル-1, 8-ジアザビシクロ[5, 4, 0]-7-ウンデセニウムクロリド）との熔融体（BIS-AF と DBU-B の重量比 2 / 0.35）を定量ポンプにて連続的に仕込んだ。含フッ素弾性状共重合体と熔融体は一定比率（共重合体 / 熔融体の重量比 = 100 / 2.35）で混練した。熔融体添加後の混練時間（即ち、混練ゾーンにおける共重合体の滞留時間）は、1 分間であった。

ダイスから吐出されたものは均一な含フッ素弾性状共重合体組成物であった。

この含フッ素弾性状共重合体組成物に、表 1 に示す配合量（重量部）で、他の添加剤を順次加えてロールにて室温で混練りし、一夜放置して熟成させた。

その後再練りを行い、金型に入れ、温度 170℃で、50 kg/cm<sup>2</sup>の加圧

- 5 下に 10 分間 1 次加硫を行い、シートおよび P 24 オーリングを成形した。ついで成形品を金型から取り出し、温度 230℃の炉内で 24 時間 2 次加硫を行った。

- 10 このようにして得た加硫フッ素ゴムのシートについて、100%引張応力、引張強さ、伸び及び硬さを測定し、一方、P 24 オーリングについて圧縮永久ひずみを測定した。なお、これらの測定は、J I S K 6 3 0 1 に準じた方法により行った。結果を表 1 に示す。

- 15 また、分散性は、生ゴムの状態（温度 100℃×5 分、または 120℃×5 分。）で厚さ 0.1 mm のフィルムに成形し、40 倍の拡大鏡により加硫成分（固溶体、ビスフェノール A F および／または D B U - B）の分散状態を観察する。全体が均一に見える場合、「良好」とし、まだらに見える場合、「不良」とする。結果を表 1 に示す。

ロール加工性は、混練用の前後のロールに別れることなく配合物をスムーズに混練できる時は「良好」とし、できない時は「不良」とする。結果を表 1 に示す。

表 1

成分	含フッ素弾性状共重合体	100
	溶融体	2.35
	MTカーボンブラック	20
	酸化マグネシウム	3
	水酸化カルシウム	6
加硫成分の分散性		良好
ロール加工性		良好
加 硫	プレス加硫	170℃×10分
	オープン加硫	230℃×24時間
常 態 物 性	100%引張応力[kg/cm <sup>2</sup> ]	56
	引張強さ[kg/cm <sup>2</sup> ]	176
	伸び[%]	218
	硬さ	71.2
	圧縮永久歪み[%] (200℃×70時間)	16.6

一定時間ごとに共重合体組成物のサンプルを採取したが、共重合体組成物サンプル間の物性のバラツキはほとんどみられなかった。

- 5 本発明によれば、加硫剤および加硫促進剤を所定量で含フッ素弾性状共重合体に、低エネルギーで容易かつ均一に配合できる。その結果として、加硫剤の配合量が少なくてもよく、成形品の加硫物性が向上し、かつ安定する。さらに、水分の多い含フッ素弾性状共重合体を処理しても加硫剤および加硫促進剤のロスを少なくすることができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 含フッ素弾性状共重合体、加硫剤および加硫促進剤を含んでなる含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法であって、
- 5 該方法は、含フッ素弾性状共重合体の水性分散液から該共重合体を凝析して得られた共重合体の凝集物を混練しながら乾燥する工程を有し、  
凝集物に、加硫剤と加硫促進剤との相溶物を添加する含フッ素弾性状共重合体組成物の製造方法。
2. 加硫剤がポリヒドロキシ化合物またはその塩であり、加硫促進剤がオニウム化合物である請求項 1 に記載の方法。
- 10 3. 相溶物が、固溶体または溶融物である請求項 1 に記載の方法。
4. 溶融状態の相溶物が、溶融状態の含フッ素弾性状共重合体の凝集物と混練される請求項 1 に記載の方法。
5. 凝集物を混練しながら乾燥する工程を、押出機において行う請求項 1 に記載の方法。
- 15 6. 凝集物の乾燥工程の途中において、凝集物に、加硫剤と加硫促進剤との溶融物または固溶体を添加する請求項 1 に記載の方法。
7. 方法が、混練しながら乾燥する工程の後に、混練工程をも有しており、加硫剤と加硫促進剤との溶融物または固溶体を乾燥工程終了後であり、混練工程前
- 20 に添加する請求項 1 に記載の方法。
8. 乾燥工程および混練工程を 2 つの押出機で行い、乾燥工程を分担する第 1 の押出機、および混練工程を分担する第 2 の押出機を用いる請求項 7 に記載の方法。
9. 第 1 の押出機が二軸押出機である請求項 7 に記載の方法。
- 25 10. 混練しながら乾燥する工程の前に、凝集物に、加硫剤と加硫促進剤との固溶体を添加する請求項 1 に記載の方法。
11. 加硫促進剤がオニウム化合物であり、オニウム化合物が、第四級アンモニウム塩及び第四級ホスホニウム塩からなる群より選ばれた少なくとも 1 種の第四級塩である請求項 1 に記載の方法。



12. 第四級アンモニウム塩が8-ベンジル-1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセニウムクロリドであり、ポリヒドロキシ化合物が2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロパンである請求項11に記載の方法。

5 13. 第四級ホスホニウム塩がベンジルトリフェニルホスホニウムクロリドであり、ポリヒドロキシ化合物が2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロパンである請求項11に記載の方法。

10 14. 相溶物が、第四級アンモニウム塩とポリヒドロキシ化合物との相溶物、第四級アンモニウム塩とポリヒドロキシ化合物の塩との相溶物、第四級ホスホニウム塩とポリヒドロキシ化合物との相溶物、および第四級ホスホニウム塩とポリヒドロキシ化合物の塩との相溶物からなる群から選択された少なくとも1種である請求項1に記載の方法。

15. 加硫剤と加硫促進剤とが所定の割合で配合されるように、相溶物を添加する際に加硫剤をも添加する請求項1に記載の方法。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05906

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> C08J3/24, 3/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C08J3/24, 3/20, C08L1/00-101/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US, 3876616, A (DU PONT DE NEMOURS & CO E I), 08 April, 1975 (08.04.75), Claims & BE, 815624, A & DE, 2426257, A & NL, 7407203, A & FR, 2231692, A & JP, 50-22048, A & GB, 1463842, A & CA, 1029499, A	1-6, 10-15
Y	JP, 55-45734, A (Daikin Industries, Ltd.), 31 March, 1980 (31.03.80), Claims (Family: none)	1-6, 10-12, 14, 15
Y	JP, 56-90836, A (Daikin Industries, Ltd.), 23 July, 1981 (23.07.81), Claims (Family: none)	1, 2, 5, 6, 11-15
A	JP, 10-176090, A (JSR Corporation), 30 June, 1998 (30.06.98), Claims (Family: none)	1-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
--	---

Date of the actual completion of the international search  
15 November, 2000 (15.11.00)

Date of mailing of the international search report  
28 November, 2000 (28.11.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05906

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 10-36570, A (The Yokohama Rubber Co., Ltd.), 10 February, 1998 (10.02.98), Claims (Family: none)	1-15
A	JP, 7-157584, A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 20 June, 1995 (20.06.95), Claims (Family: none)	1-15

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> C08J3/24, 3/20

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> C08J3/24, 3/20, C08L1/00-101/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	US, 3876616, A (DU PONT DE NEMOURS & CO E I) 8. 4月. 1975 (08. 04. 75) 特許請求の範囲&BE, 815624, A&DE, 242625 7, A&NL, 7407203, A&FR, 2231692, A& JP, 50-22048, A&GB, 1463842, A&CA, 1029499, A	1-6, 10-15

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15. 11. 00

国際調査報告の発送日

28.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号 100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

吉澤 英一

4J

9543

電話番号 03-3581-1101 内線 3493

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 55-45734, A (ダイキン工業株式会社) 31. 3 月. 1980 (31. 03. 80) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6, 10-12, 1 4, 15
Y	J P, 56-90836, A (ダイキン工業株式会社) 23. 7 月. 1981 (23. 07. 81) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 2, 5, 6, 11-1 5
A	J P, 10-176090, A (ジェイエスアール株式会社) 3 0. 6月. 1998 (30. 06. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-15
A	J P, 10-36570, A (横浜ゴム株式会社) 10. 2月. 1 998 (10. 02. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-15
A	J P, 7-157584, A (信越化学工業株式会社) 20. 6 月. 1995 (20. 06. 95) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-15

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

47  
Translation

Applicant's or agent's file reference 661956	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/05906	International filing date (day/month/year) 31 August 2000 (31.08.00)	Priority date (day/month/year) 01 September 1999 (01.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08J 3/24, 3/20		
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 29 March 2001 (29.03.01)	Date of completion of this report 14 August 2001 (14.08.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	7-9	YES
	Claims	1-6,10-15	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

Document 1 (US, 3876616, A) cited in the international search report describes a process for preparing a composition containing a fluoroelastomer copolymer, a polyhydroxy compound as a vulcanizing agent, and an onium compound as a vulcanization accelerator, and it states that the above vulcanizing agent and vulcanization accelerator are contained in the product of coagulating a fluoroelastomer latex copolymer.

When the inventions set forth in Claims 1-6 and 10-15 are compared with the inventions described in document 1, they differ from the standpoint that in the former a compatibilized mixture of vulcanizing agent and vulcanization accelerator is added to the coagulate, whereas in the latter this matter is not mentioned.

However, the addition per se of a compatibilized mixture of vulcanizing agent and vulcanization accelerator with the purpose of improving dispersion properties when adding vulcanizing agent and vulcanization accelerator to a fluoroelastomer copolymer was public knowledge prior to the filing date of this application as shown in document 2 (JP, 55-45734, A) and document 3 (JP, 56-90836, A) cited in the international search report. This examination finds that persons skilled in the art can easily apply this publicly known technology to the invention described in document 1 with the goal of improving dispersion properties, and therefore persons skilled in the art can easily predict the advantage obtained thereby. As a result, the inventions set forth in Claims 1-6 and 10-15 do not appear to involve an inventive step.

None of the documents cited in the international search report describes the inventions set forth in Claims 7-9, and these inventions are not obvious to persons skilled in the art.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 31 AUG 2001

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 661956	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/05906	国際出願日 (日.月.年) 31.08.00	優先日 (日.月.年) 01.09.99
国際特許分類(IPC) Int.Cl <sup>7</sup> C08J3/24, 3/20		
出願人(氏名又は名称) ダイキン工業株式会社		

- 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
- この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。  
☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で ページである。
- この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  
I ☒ 国際予備審査報告の基礎  
II ☐ 優先権  
III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成  
IV ☐ 発明の単一性の欠如  
V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明  
VI ☐ ある種の引用文献  
VII ☐ 国際出願の不備  
VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 29.03.01	国際予備審査報告を作成した日 14.08.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 吉澤 英一 電話番号 03-3581-1101 内線 3493	4 J 9543

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

1-15

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲

7-9

有

請求の範囲

1-6, 10-15

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

1-15

有

請求の範囲

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

国際調査報告で示された文献1(US 3876616 A)には、含フッ素弾性状共重合体、加硫剤としてのポリヒドロキシ化合物および加硫促進剤としてのオニウム化合物を含有する組成物の製造方法において、上記含フッ素弾性状共重合体ラテックスの凝固生成物に、上記加硫剤および加硫促進剤を含有することが記載されている。

請求の範囲1-6, 10-15に記載された発明と上記文献1に記載された発明とを比較すると、前者は加硫剤と加硫促進剤との相溶物を凝集物に添加しているのに対し、後者はこの点について記載がない点で、両者は相違している。

しかしながら、含フッ素弾性状共重合体に加硫剤および加硫促進剤を添加するに際し、分散性向上の目的で、加硫剤および加硫促進剤の相溶物を添加すること自体は、国際調査報告で示された文献2(JP 55-45734 A)および文献3(JP 56-90836 A)に記載されているように本願出願前に公知の技術である以上、上記文献1に記載された発明において、分散性向上の目的で当該公知の技術を適用することは、当業者が容易になし得るものと認められ、また、それによって奏される効果も当業者が容易に予測しうる程度のものと認められる。したがって、請求の範囲1-6, 10-15に記載された発明は進歩性を有しない。

請求の範囲7-9に記載された発明は、国際調査報告で示されたいずれの文献にも記載されておらず、また、当業者にとり自明なものでもない。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 661956	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05906	国際出願日 (日.月.年) 31.08.00	優先日 (日.月.年) 01.09.99
出願人(氏名又は名称) ダイキン工業株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> C 08 J 3/24, 3/20

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> C 08 J 3/24, 3/20, C 08 L 1/00-101/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	US, 3 876 616, A (DU PONT DE NEMOURS & CO E I) 8. 4月. 1975 (08. 04. 75) 特許請求の範囲 & BE, 8 156 24, A & DE, 2 426 25 7, A & NL, 7 407 203, A & FR, 2 231 692, A & JP, 50-22048, A & GB, 1 463 842, A & CA, 1 029 499, A	1-6, 10-15

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15. 11. 00

国際調査報告の発送日

28.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

吉澤 英一



4 J

9543

電話番号 03-3581-1101 内線 3493

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 55-45734; A (ダイキン工業株式会社) 31. 3 月. 1980 (31. 03. 80) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6, 10-12, 1 4, 15
Y	J P, 56-90836, A (ダイキン工業株式会社) 23. 7 月. 1981 (23. 07. 81) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 2, 5, 6, 11-1 5
A	J P, 10-176090, A (ジェイエスアール株式会社) 3 0. 6月. 1998 (30. 06. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-15
A	J P, 10-36570, A (横浜ゴム株式会社) 10. 2月. 1 998 (10. 02. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし).	1-15
A	J P, 7-157584, A (信越化学工業株式会社) 20. 6 月. 1995 (20. 06. 95) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-15

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



# PATENT COOPERATION TREATY

PCT



From the INTERNATIONAL BUREAU

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

AOYAMA, Tamotsu  
Aoyama & Partners  
Imp Building  
3-7, Shiromi 1-chome  
Chuo-ku, Osaka-shi  
Osaka 540-0001  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 08 March 2001 (08.03.01)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference 661956			
International application No. PCT/JP00/05906	International filing date (day/month/year) 31 August 2000 (31.08.00)	Priority date (day/month/year) 01 September 1999 (01.09.99)	
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
CN,EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 08 March 2001 (08.03.01) under No. WO 01/16215

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

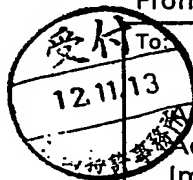
## PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)



TOYAMA, Tamotsu  
Toyama & Partners  
Imp Building  
3-7, Shiromi 1-chome  
Chuo-ku, Osaka-shi  
Osaka 540-0001  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 02 November 2000 (02.11.00)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference 661956	
International application No. PCT/JP00/05906	
International publication date (day/month/year) Not yet published	
International filing date (day/month/year) 31 August 2000 (31.08.00)	Priority date (day/month/year) 01 September 1999 (01.09.99)
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
01 Sept 1999 (01.09.99)	11/247332	JP	20 Octo 2000 (20.10.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  Carlos Naranjo  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**